

福井県における浮遊粒子状物質（SPM）環境濃度特性

Characteristics of Suspended Particulate Matter Concentration in Fukui

三浦 麻*
(福井大学教育地域科学部)
酒井 忠彰**
(福井県安全環境部)
谷口 佳文***
福島 綾子***
吉川 昌範***
(福井県衛生環境研究センター)
坪内 彰****
(福井大学地域環境研究センター)

Abstract

In this study, we have investigated the characteristics of suspended particulate matter (SPM) concentrations in Fukui. SPM concentrations tended to rise because of the yellow dust phenomenon during March to May in the whole area. It is suggested that SPM concentrations rose everywhere except the inland regions, as these regions are influenced by the land and sea breeze circulation. The seasonal variation is characterized by SPM advection from the continents in spring possibly leading to a simultaneous increase in the photochemical oxidant (O_3) concentration. Moreover, rise in SPM concentrations in summer suggests its involvement in the generation of secondary SPM in some regions. The temporal variation is characterized by a diurnal rise in SPM concentrations similar to that of nitrogen oxide (NO_x) in all the sites. In addition, higher SPM concentrations are recorded during the daytimes in summer as compared to the other seasons. This is speculated to be due to photochemical reaction or the influence of sea breeze dominating during the daytime.

1. はじめに

近年、大陸からの黄砂等の浮遊粒子状物質が越境汚染として日本国内に飛来し、その影響が懸念されている。大気中の粒子状物質はエアロゾルとも呼ばれ、発生源あるいは発生後に受けた物理化学的变化が異なる多くの粒子から成り立っている。その粒径範囲は広く、粒径の大きな粒子（粒子直径 $>10\mu m$ ）は発生後重力落下により速やかに大気中から取り除かれ、粒径の小さな粒子（粒子直径 $<10^{-3}\mu m$ ）はより大きな粒子へ拡散、付着することで大気中から減少する⁽¹⁾。国内を浮遊する物質は、粒径 $10\mu m$ 以下の浮遊粒子状物質（Suspended Particulate matter：SPM）、粒径 $2.5\mu m$ 以下の微小浮遊粒子状（キーワード：SPM, 季節性, 地域性, 黄砂, 海陸風）

* Asa Miura
(Department of faculty of Education and Regional Studies University of Fukui, 3-9-1 Bunkyo, Fukui 910-8507)
** Tadaaki Sakai
(Section of Safety and Environment, Fukui Prefectural government office, Fukui, 910-8580)
*** Yoshifumi Taniguchi, Ayako Fukushima, Masanori Yoshikawa
(Fukui Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science, 39-4 Harame-machi Fukui. 910-8551)
**** Akira Tsubouchi
(University of Fukui Research and Education Center for Regional Environment, 3-9-1 Bunkyo, Fukui 910-8507)

物質（Particle matter 2.5：PM2.5）等の粒子状物質を含んでいる。粒子状物質の発生源には自然源および人為源がある。自然源としては、大陸の乾燥地帯の土壌粒子が強風によって大気中に舞い上がる砂塵や海からの微水滴が大気中で乾燥して生じる海塩粒子がある、国内に越境移流する代表的な粒子状物質としては黄砂があるが、大陸から輸送される際に、黄砂の化学組成はその成分によって発生源の粒子含有量を超える量の大气汚染物質や海洋等から付加される⁽²⁾。これらの付加物質には、人為源である経済発展の著しいアジア地域の化石燃料の燃焼や自動車の排気ガスによって生成された物質（硫酸塩、硝酸塩、炭素粒子等）等が含まれる。また、家畜、作物等への病原菌輸送も懸念される。日本海側に面している福井県では、大陸から越境して飛来する物質の影響や季節特有の局地風系である海陸風によって飛散する海塩粒子の影響が大きいことが予想される。一方、福井県では自動車の世帯あたりの普及台数が最も高く⁽³⁾、自動車に依存した生活スタイルであるため、自動車排ガスの影響も考慮されなければならない。

SPM には、発生源から直接的に大気中に排出された大气汚染物質である 1 次粒子と発生源から出た後に大気中で生成する 2 次粒子が含まれる。大きな粒子ほど鼻や喉に沈着しやすく、健康上最も重要な肺胞内に対しては、粒径として $10\ \mu\text{m}$ 以下から $0.1\ \mu\text{m}$ 程度の粒子が沈着しやすい⁽¹⁾。したがって、粒径が $10\ \mu\text{m}$ 以下の粒子は人の健康に影響を及ぼすことが懸念される。現在定められている SPM の環境基準は、重量濃度 ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) を用いて、1 時間値の 1 日平均値が $100\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 以下であり、かつ、1 時間値が $200\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 以下であること、としている⁽⁴⁾。福井県における近年の SPM 環境基準の達成状況は 100% の達成率であり⁽⁵⁾、大気環境は良好であるといえる。しかし、福井県内では環境基準を超えるような SPM が、県内全域において黄砂期間に高濃度で飛来しており、黄砂期間以外においても県北部を中心に単発的に観測されることがある。国内外の発生源から排出される PM2.5 を含む SPM の粒子状物質によって影響を受けていることは否定できない。したがって、県内の環境濃度や分布状況を把握しておくことは、今後の大気環境汚染に対応するためには重要である。

粒子状物質に関する調査研究は、国立環境研究所が各自治体の研究機関と共同して行ってきた^(たとえは 6, 7, 8)。最近では、PM2.5 に関する研究報告が増えている^(9, 10) が、いずれも広域を対象としたものが多い。地域への有用な情報提供を行うためには、県内の地域的な分布特性を詳細に明らかにすることが不可欠である。本研究の最終目的は福井県内に降下する飛来物質の実態を地域規模で解明することである。本報告では、粒子径 $10\ \mu\text{m}$ 以下の SPM に着目して、地域性、季節性、および日変化について、県内の SPM 分布特性を明らかにすることを目的とし、常時監視測定局のデータを解析した⁽¹¹⁾。

2. 研究調査地域および使用データ

本研究の調査領域と一般環境大気測定局の位置を Fig.2.1 に示す。また、Table 2.1 に解析に使用した項目と各観測局の観測期間を示した。福井県衛生環境研究センターが設置している大気汚染常時監視測定局のうち、地域全体の汚染状況を把握するために設置されている一般環境大気測定局の 14 地点で取得したデータを使用した。本解析に用いた項目は、SPM、光化学オキシダント (O_3)、窒素酸化物 (NO_x) の濃度値、および風速風向値 (WS, WD) であり、いずれも 1 時間値である。 NO_x は二酸化窒素 (NO_2) と一酸化窒素 (NO) の濃度の合計である。



Fig.2.1 福井県内の一般環境大気測定局位置図

3. 結果および考察

3.1 福井県における SPM 濃度分布の概観

(1) SPM 濃度について

2000 年から 2013 年までの 14 年間の SPM 濃度データに基づき、福井県内を飛来する SPM 濃度の季節変化について調べた。観測局 14 地点においてそれぞれ 1 時間値の SPM 濃度の月平均値を求めた。Fig.3.1 は、14 地点の月平均値をもとに算出した県内の 14 地点の平均値について SPM 濃度と風速の季節変化を示したものである。Fig.3.1 から、福井県内を飛来する SPM 濃度は 4 月から 8 月の春期から夏期にかけて高く、平均濃度は $25 \sim 28 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ であった。これに対して、1 月および 12 月では、平均濃度は $15 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 以下となり、冬期は最も SPM 濃度が低くなる。風速変化については、6 月から 8 月の夏期には平均風速は約 $2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ であり、この期間を除く春期、秋期および冬期では、平均風速は $2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 以上であった。これらのことから、風速が小さくなる夏期には SPM 濃度が高くなり、これに対して風速が大きくなる冬期には SPM 濃度が低くなる傾向が見られた。

(2) 福井県の黄砂について

春期は、西日本を中心に黄砂飛来量が最も多くなる時期である。2000 年から 2012 年に福井県内において黄砂を観測した日数を Table 3.1 に示す。黄砂観測は全国の気象台において黄砂による大気の混濁状態を観測者が目視で確認して判断している⁽¹²⁾。気象庁が実施している黄砂の観測結果⁽¹²⁾によると、2000 年から 2012 年までの全国 60 地点で観測された黄砂の飛来日数は 384 日であり、このうち福井で観測されたのは 83 日であった。西日本を中心に多く観測されており、最も多く観測されている地域は熊本の 173 日であり、福井では 26 番目であった。また、日本海側 12 地点のうち、最も多く観測されている地域は松江（170 日）であり、福井県は 8 番目と黄砂の飛来が多いともいえない。しかし、福井県において特に 3 月～5 月の 3 か月間に集中的に飛来する黄砂（Table3.1）が、県内の SPM 濃度変化に及ぼす影響は無視できない。この時期の黄砂は大陸の乾燥地域を通過する強風を伴う気象じょう乱が集中することによる⁽¹³⁾。Fig.3.2 に、14 観測点中 7 地点（三国、金津、福井、麻生津、敦賀、小浜、大野）における黄砂飛来した日（黄砂日）および黄砂飛来がない日（非黄砂日）の風向別の SPM 平均濃度（1 時間値）を示す。また、各地点の静穏時の SPM 平均濃度と解析データ数を Table3.2 に示す。これによると、黄砂日の SPM 濃度は各地点とも非黄砂日より大きく上回った。黄砂日においては、各地点とも西よりの日本海沿岸域方向からの侵入だけでなく、東よりの内陸からの SPM が飛来していることが認められた。

Table.2.1 解析に用いた項目および観測期間

| 常時観測局（一般局） | 解析項目 | 観測期間（年） |
|------------|--|-----------|
| 三国 | SPM, O _x , NO _x , WS, WD | 2000—2013 |
| 金津 | SPM, WS, WD | 2000—2013 |
| 坂井 | SPM, WS, WD | 2000—2013 |
| センター | SPM, WS, WD | 2000—2013 |
| 福井 | SPM, O _x , NO _x , WS, WD | 2000—2013 |
| 麻生津 | SPM, WS, WD | 2004—2013 |
| 神明 | SPM, WS, WD | 2000—2013 |
| 今立 | SPM, WS, WD | 2003—2013 |
| 武生 | SPM, WS, WD | 2000—2013 |
| 敦賀 | SPM, O _x , NO _x , WS, WD | 2000—2013 |
| 和久野 | SPM, WS, WD | 2000—2013 |
| 三方 | SPM, WS, WD | 2003—2013 |
| 小浜 | SPM, WS, WD | 2002—2013 |
| 大野 | SPM, O _x , NO _x , WS, WD | 2002—2013 |

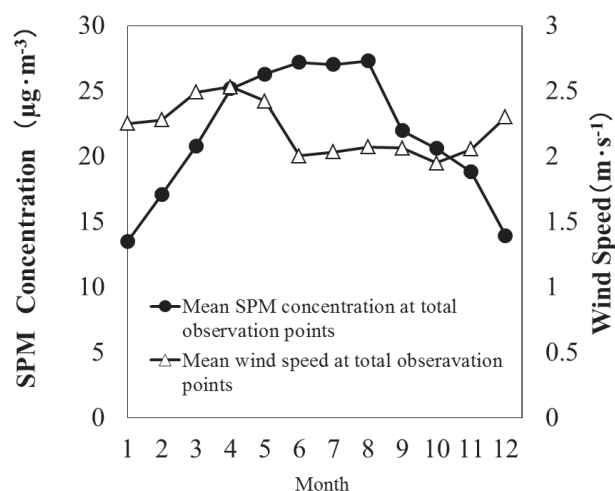
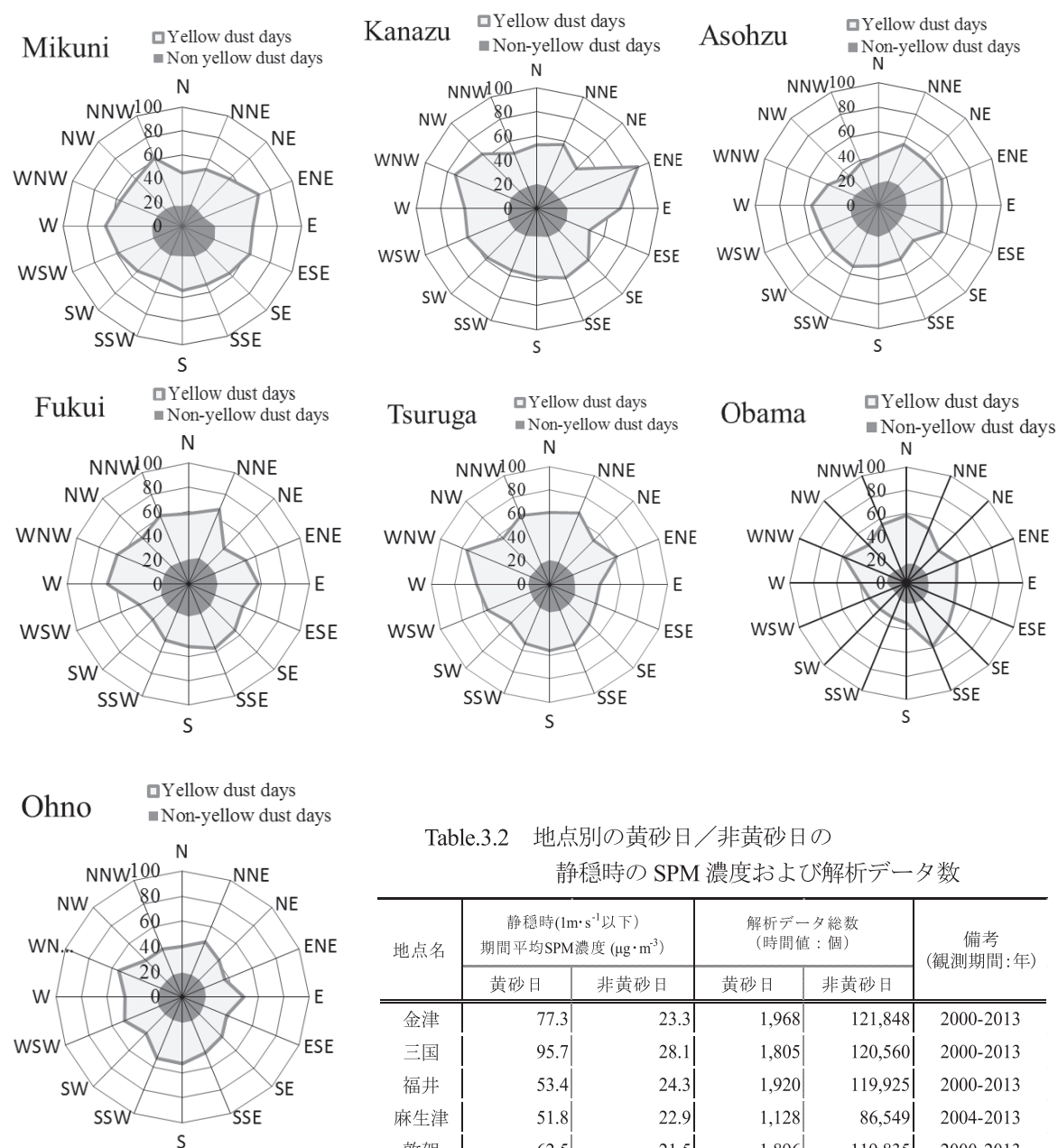


Fig.3.1 福井県内を飛来する SPM 平均濃度の季節変化（2000 年-2013 年）

Table3.1 福井県における 13 年間（2000～2012）の黄砂日数

| Month | Feb. | Mar. | Apr. | May | Nov. | Dec. | Total |
|--------------------------------|------|------|------|-----|------|------|-------|
| Frequency of Yellow sand (day) | 2 | 25 | 34 | 16 | 4 | 2 | 83 |

Table3.2 地点別の黄砂日／非黄砂日の
静穏時の SPM 濃度および解析データ数

| 地点名 | 静穏時(1m・s ⁻¹ 以下) 期間平均SPM濃度 (μg・m ⁻³) | | 解析データ総数 (時間値: 個) | | 備考 (観測期間: 年) |
|-----|---|------|---------------------|---------|-----------------|
| | 黄砂日 | 非黄砂日 | 黄砂日 | 非黄砂日 | |
| 金津 | 77.3 | 23.3 | 1,968 | 121,848 | 2000-2013 |
| 三国 | 95.7 | 28.1 | 1,805 | 120,560 | 2000-2013 |
| 福井 | 53.4 | 24.3 | 1,920 | 119,925 | 2000-2013 |
| 麻生津 | 51.8 | 22.9 | 1,128 | 86,549 | 2004-2013 |
| 敦賀 | 62.5 | 21.5 | 1,896 | 119,835 | 2000-2013 |
| 小浜 | 45.3 | 11.9 | 1,680 | 104,208 | 2002-2013 |
| 大野 | 42.0 | 16.6 | 1,680 | 102,957 | 2002-2013 |

Fig.3.2 地点別の黄砂日／非黄砂日の
風向別平均 SPM 濃度 (グラフ中の数値は
濃度 (μg・m⁻³) を示す)

これは、地域のもつ地形等の局地的な要因が影響していると考えられる。たとえば、小規模の起伏であっても、斜面下の風下側に山越え気流の降下風が吹くことで、黄砂が舞い降りる可能性があり、それが東風に巻き上げられることで飛来すると考えられる。なお、静穏時でも、黄砂日には平均 $40 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 以上の濃度が観測されることがわかった (Table 3.2)。また、非黄砂日と比較して黄砂日の SPM 濃度は各地点ともに時間平均 $60 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 前後まで上昇した (Fig.3.2)。

これらのことから、春期の 3 月から 5 月の福井県内で SPM 濃度が上昇する傾向は、黄砂日に飛来した高濃度の SPM が影響していることを示唆する。

(3) SPM 濃度変化の地域分類とパターン

県内における SPM 濃度の季節変化について検討した。14 地点の SPM 濃度を地域別に (a) 金津、坂井、三国、(b) 福井、麻生津、神明、武生、今立、センター、(c) 三方、小浜、敦賀、和久野、(d) 大野、と 4 つに分類した。各地域別の SPM 濃度と 14 地点の平均 SPM 濃度の季節変化を Fig.3.3 に示

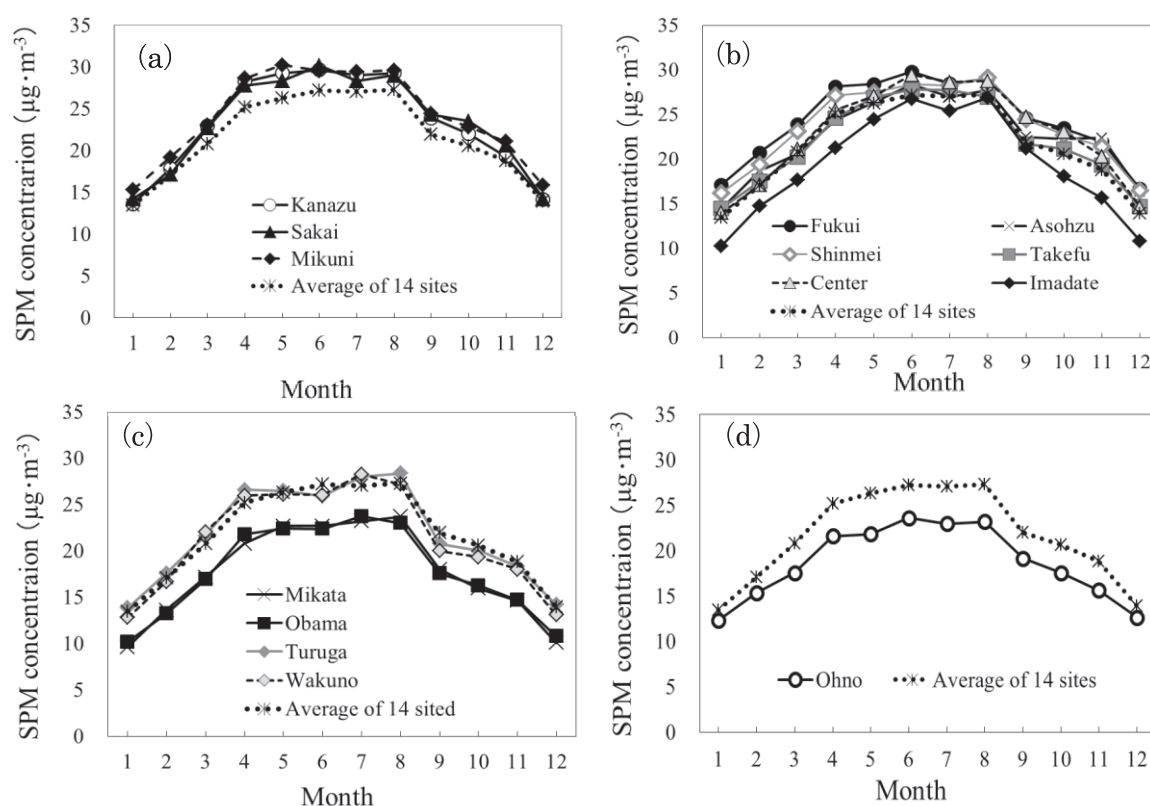


Fig.3.3 SPM 濃度の季節変化の地域性

(a) 県北部（金津、坂井、三国）、(b) 県北中央部（福井、麻生津、神明、武生、センター、今立）、(c) 県南部（三方、小浜、敦賀、和久野）および (d) 内陸部（大野）

Table.3.3 地域別の SPM 平均濃度の年平均値、最大値および最小値

| 地域区分 | SPM平均濃度 ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) | | |
|-----------|---|------|------|
| | 平均値 | 最大値 | 最小値 |
| (a) 県北部 | 23.6 | 30.0 | 14.4 |
| (b) 県北中央部 | 22.5 | 28.6 | 14.4 |
| (c) 県南部 | 19.6 | 26.0 | 11.6 |
| (d) 内陸部 | 18.6 | 23.6 | 12.3 |
| 全域平均 | 21.9 | 27.6 | 13.6 |

す。また Table3.3 に、各地域全体と 14 地点平均値の SPM 濃度の年平均値、最大値、最小値を示す。

(a) の観測点は、県北北部に位置する 3 地点である。地点間の差はほとんどなく、地点間でほぼ重なりあって推移した。SPM の濃度幅は $14.4 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ～ $30.0 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ であり (Table3.3)、春期から夏期にかけて平均的にほぼ $30\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ の濃度に達した。本地域は 1 年を通して 14 地点の平均値よりも SPM 濃度が高くなった。(b) の観測点は県北中央部に位置しており、沿岸域から直線距離で 20 km 程度の内陸に位置するほぼ南北方向に点在する 6 地点である (Fig.2.1)。これらの地点間の SPM 濃度の変化傾向は類似した。市街地を含む地域であるため、今立を除く地点では最小値の SPM 濃度は高めに推移した。最大値については 6 地点すべてにおいて県北北部 (a) よりも濃度は低く、この地域においては $30 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ に届かないことがわかった。14 地点平均とほぼ類似した推移を示したのはセンターと武生であった。なお、今立が他の 5 地点より 1 年を通して SPM 濃度が低くなっているのは観測点の周囲環境が影響しているものと推測される。(c) の観測点は県南沿岸部であり、県南沿岸部の敦賀・和久野および三方・小浜の各地点間における変化傾向がそれぞれ重なって推移した。また、敦賀および和久野の推移は 14 地点平均のそれと類似した。この地域は県北部と比較して SPM 濃度が低く、年平均濃度は県北部 (a) および (b) より下回った (Table 3.3)。(d) の観測点は最も内陸部に位置する大野である。最大値 ($23.6\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) および平均値 ($18.6\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) は県内において最低値を示した (Table3.3)。大野の SPM 濃度推移は、14 地点の平均のそれよりも 1 年を通して低く、県南の 2 地点 (三方、小浜) と類似した。

これらの 4 つの分類における変化傾向によると、県北部 (a) および (b) のほうが県南部 (c) および県内陸部 (d) と比較して、年間を通して SPM 濃度が高く、福井県内において、粒子状物質の影響を受けやすい地域であることがいえる。また共通して、いずれも 4 月から 8 月の暖候期に SPM 濃度は高くなり、一方で寒候期においては、SPM 濃度は低下する傾向を示した。夏期の日中に SPM が高濃度で現れる地域は、光化学反応の影響を大きく受けていることがある。さらに、夏期は、大気が上下方向に対流する混合層が上空まで発達しており、日射の影響によって温度差が生じ発達する海陸風が卓越するために、汚染空気塊の移流や反応促進に寄与することで、海陸風循環の領域に含まれる地域は高濃度になることがある⁽¹⁴⁾。冬期は、一般に季節風が卓越しているために風速が大きくなることにより SPM が拡散し、希釈効果が高まる。冬期において濃度が高まる時は、風が弱い日であり、初冬に多いとされている⁽¹⁴⁾。これらのことから、各地域における SPM 濃度変化傾向は、風系と紫外線に影響されていることが示唆される。このような SPM 濃度の季節変化は、一部の地域を除いて、全国の地域においても暖候期に濃度が高い分布となっている。黄砂の影響を顕著に受けている九州地域では、黄砂時期の 5 月をピークに濃度が上昇する傾向にある⁽⁸⁾。また、濃度幅については、福井県は $10\sim30\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ で分布しており、これは北陸地方の他の地域においてもほぼ同様の濃度幅であった。全国では $20\sim40\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ で推移する地域が多く⁽⁸⁾、これらと比較すると北陸地域の SPM 濃度は 1 年を通して低いことが特徴であるといえる。

3.2 福井県内の SPM 濃度変化に及ぼす地域性

県内の SPM 濃度の変化傾向は 4 つの地域に分類されることが示された。各地域に含まれる代表地点を (a) 県北部 (三国)、(b) 県北中央部 (福井)、(c) 県南部 (敦賀)、(d) 内陸部 (大野) を選択し、SPM 濃度とその他の大気汚染物質との関連を合わせて検討する。

(1) 地点別 SPM 濃度分布と局地風向との関係

SPM 濃度特性を局地風向との関連について検討した。福井県は日本海側に位置するため、季節あるいは時間帯によって、SPM 濃度分布はその地域における局地的な風系の影響を受けると考えられる。そこで、海洋に面する地域において特徴的な局地風である海陸風循環の SPM 分布に対する影響について検討する。海陸風によって侵入する SPM には海塩粒子も含まれて考えられる。海塩粒子は粗大粒子とされ、その粒径は $2 \mu\text{m}\sim10 \mu\text{m}$ の大きさである⁽¹⁴⁾。

海陸風の発生しやすい時間帯に分類し、加えて各地域で観測される SPM について風向、濃度に関

冬期

秋期

夏期

春期

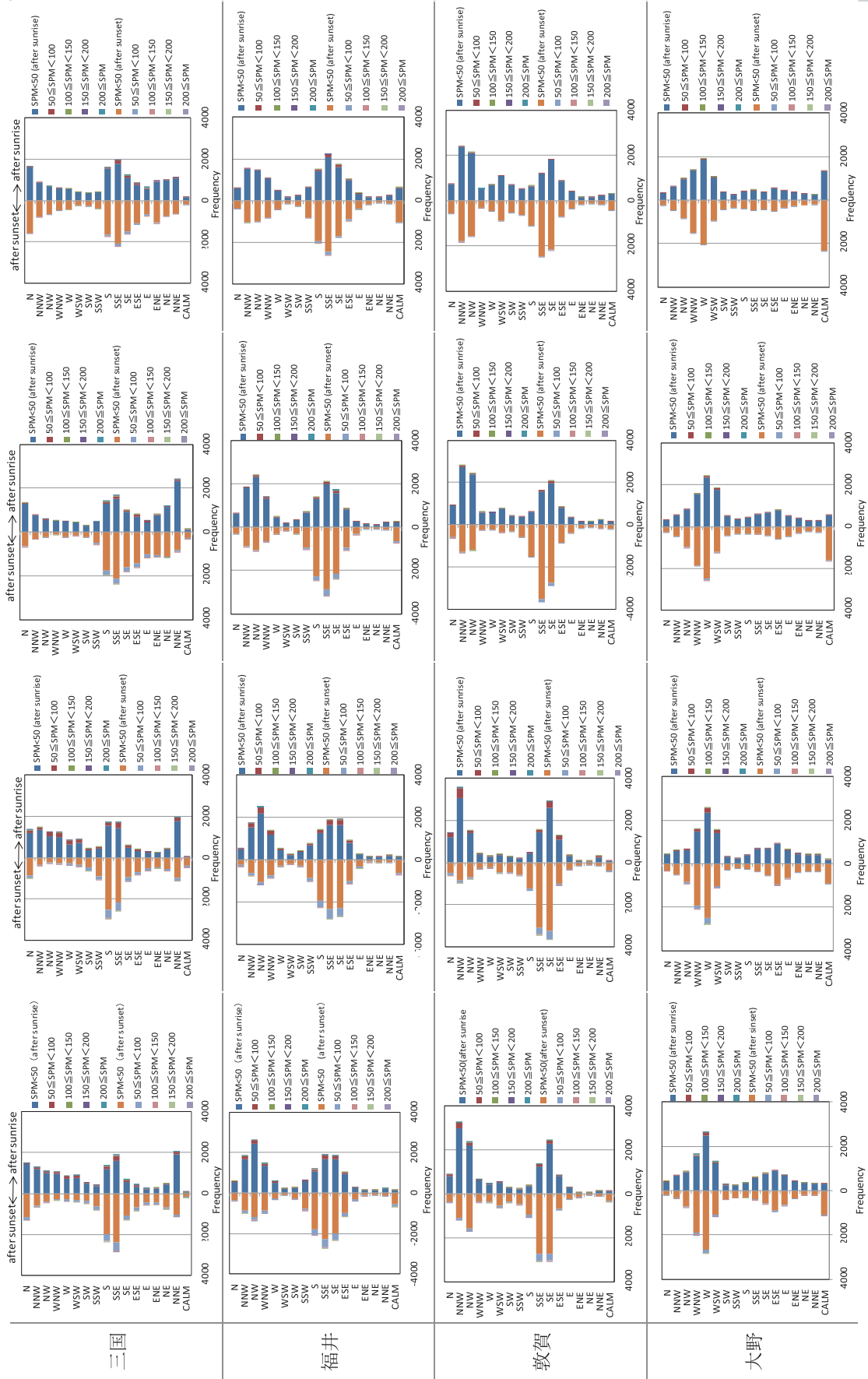


Fig. 3.4 海陸風発生時刻における風向別SPM平均濃度

する発生頻度を検討した。Fig.3.4 に各地域の代表地点における季節別の海風発生時刻（7:00～18:00）および陸風発生時刻（19:00～6:00）に分類し、風向による SPM 濃度別発生頻度を示した。濃度の分類は 5 段階（SPM 濃度 $<50\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, $50\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}\leq\text{SPM 濃度}<100\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, $100\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}\leq\text{SPM 濃度}<150\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, $150\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}\leq\text{SPM 濃度}<200\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, $200\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}\leq\text{SPM 濃度}$ ）とした。また、各グラフの中央軸(0)から右側を日出後の時間帯(海風発生時刻)とし左側の頻度分布を日没後の時間帯(陸風発生時刻)として示した。なお、無風状態となる風の発生時刻は考慮していない。

Table 3.4 各地点における SPM 濃度 $200\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 以上の出現率

| 地点 | 発生時間帯 | 200 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}\leq\text{SPM}$ の出現率 (%) | | | |
|----|-------|--|------|------|------|
| | | 春期 | 夏期 | 秋期 | 冬期 |
| 三国 | 日中 | 0.15 | 0.04 | 0.61 | 0.52 |
| | 夜間 | 0.07 | 0.01 | 0 | 0 |
| 福井 | 日中 | 0.06 | 0.01 | 0.01 | 0 |
| | 夜間 | 0.03 | 0.01 | 0 | 0 |
| 敦賀 | 日中 | 0.13 | 0.01 | 0 | 0.01 |
| | 夜間 | 0.08 | 0 | 0 | 0 |
| 大野 | 日中 | 0.05 | 0 | 0 | 0 |
| | 夜間 | 0.02 | 0 | 0 | 0 |

県内全域において各地点の地域特性が表れた。一般に海陸風が及ぶ範囲は 20～40 km である⁽¹⁵⁾。この範囲内に入る沿岸域に近い地点の県北部（三国）および県南部（敦賀）では、冬期を除いて海陸風循環の傾向が認められた。三国では、春期および夏期の日中の海風発生時刻に北から北西よりの風向から SPM が侵入しており、夜間の陸風発生時刻において南東よりの風向からの SPM の侵入が相対的に多くなった。陸風として三国に吹いた風は、南東方向の上流からの九頭竜川に沿った風系によって SPM が飛来する傾向にあると示唆される。敦賀では、春期、夏期および秋期において海陸風循環が顕著となった。すなわち、日中の海風発生時刻では北西よりの風向からの SPM 侵入頻度が高く、夜間の陸風発生時刻においては、南東よりの風向からの頻度が高くなった。

県北中央部（福井）では、ある程度海陸風循環の傾向がみられた。福井から沿岸へ向かって北西よりに開けており、沿岸域から直線距離で約 18 km 内陸部にあるため、海陸風系は届く範囲内にある。三国の海風の風向は北よりの頻度が高くなったが、福井では北西の風向の頻度が高い。これは、海風が地形の影響を受けて北西方向に迂回して福井に入る傾向にあると考えられる。一方、夜間の陸風時刻では南～南東にかけての風向による SPM の侵入頻度が高くなった。

内陸部（大野）は最も沿岸域から遠く、海陸風系の及ばない距離に位置する。年間を通して海陸風循環は認められなかった。大野における優占風向は西～西北西であり、日中および夜間に発生する海陸風循環に関係なく、優占風向から SPM が侵入することが示された。

以上の結果から、海陸風循環による SPM 濃度分布への影響は内陸部を除く県内地域においてみられるといえる。

濃度に関しては、Fig.3.4 にみられるように、全域において 1 時間に観測される SPM は $100\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ よりも低い濃度で侵入する頻度が高いことがわかった。Table 3.4 に SPM 濃度が $200\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 以上の各地点における出現率を示した。環境基準値である 1 日に観測される 1 時間濃度が $200\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ を超えるような高濃度 SPM は、福井県全体としては出現率が 1% に満たないことが示された。しかし、黄砂時期の春期では海陸風循環に関係なく、全域で環境基準を超える濃度で SPM は観測されることがある。沿岸域では、特に黄砂と海陸風の影響を受ける三国においては年間を通して環境基準を超える SPM が飛来する可能性があることがわかった。

(2) 地点別 SPM 濃度とその他大気汚染物質濃度の季節性

SPM 濃度に加えて、光化学オキシダント (Ox)、窒素酸化物 (NOx)、風速 (WS) の変化傾向をあわせて検討した。SPM 濃度の変化に対する O_x 濃度、NO_x 濃度および風速のそれぞれの変化の関わりについて、各地点における 4 要素 (SPM, O_x, NO_x, WS) の季節変化を Fig.3.5 に示す。

各地点に共通して SPM 濃度は 1 月から上昇し始めて春期で濃度が最大となり、以降 8 月までの期間において各地点の SPM は最大濃度がほぼ維持された。特に 3 月～5 月は黄砂飛来日の最多期間にあ

たることが、高濃度の SPM をもたらす要因の一つである。年間を通じてこの時期の風速は大きい。また、SPM 濃度の上昇と合わせて Ox 濃度の上昇が各地点で見られ、いずれの地点もピーク月が 5 月を示した。しかし、6 月から 8 月にかけての SPM は濃度を維持したままであるが、Ox 濃度はいずれの地点においても急下降している。

Ox は大気中の NOx と SPM に含まれる揮発性有機化合物（Volatile Organic Compounds : VOCs）が紫外線による光化学反応によって生成されることが知られている。VOCs の主な発生源は、自動車排ガス、塗装や溶剤の蒸発であり、2 次有機粒子（有機の SPM）の原因物質とされている。また、Ox を生成する過程で光化学反応により発生した NOx から無機の SPM が生成される⁽¹⁶⁾。春期から夏期の 8 月にかけては、全天日射量が大きくなり、紫外線が次第に強くなる時期である。また、Ox 濃度が上昇する要因は、成層圏からの沈降、大陸からの移流、地域で生成される 3 つが示されている⁽⁷⁾。成層圏からの沈降は大気安定度の大きい夜間に比較低濃度で生じることが多く、大陸から移流した場合には高濃度を示し、SPM 濃度とともに上昇する。Fig. 3.5 にみられるように 3 月～5 月にかけて平均 Ox 濃度が上昇変化を示した理由は、大陸から SPM とともに移流する傾向があることが考えられる。

また、6 月から 8 月の期間では、地域において 2 次的に生成される SPM（2 次粒子）と光化学反応によって Ox が生成される傾向があるとみられる。この時期の SPM は、県内において広域的に濃度が上昇しているが、黄砂時期とは異なるため、地点によっては海洋からの海塩粒子の移流または地域発生源によるものであると考えられる。

各地点間における風速変化は相違が見られた。県北沿岸部の三国は冬期の季節風の影響により、平均風速 $3.5\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 程度であり、夏期との平均風速の年間格差は $1\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ である。一方、県南沿岸部の敦賀は三国と同様に日本海沿岸域に面しているが、冬季の平均風速が $2.5\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 程度であり三国と比較して小さく、風速変化の年間格差は $0.5\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 以下である。これは、観測点が敦賀半島の地形の影響を受けているためであると考えられる。

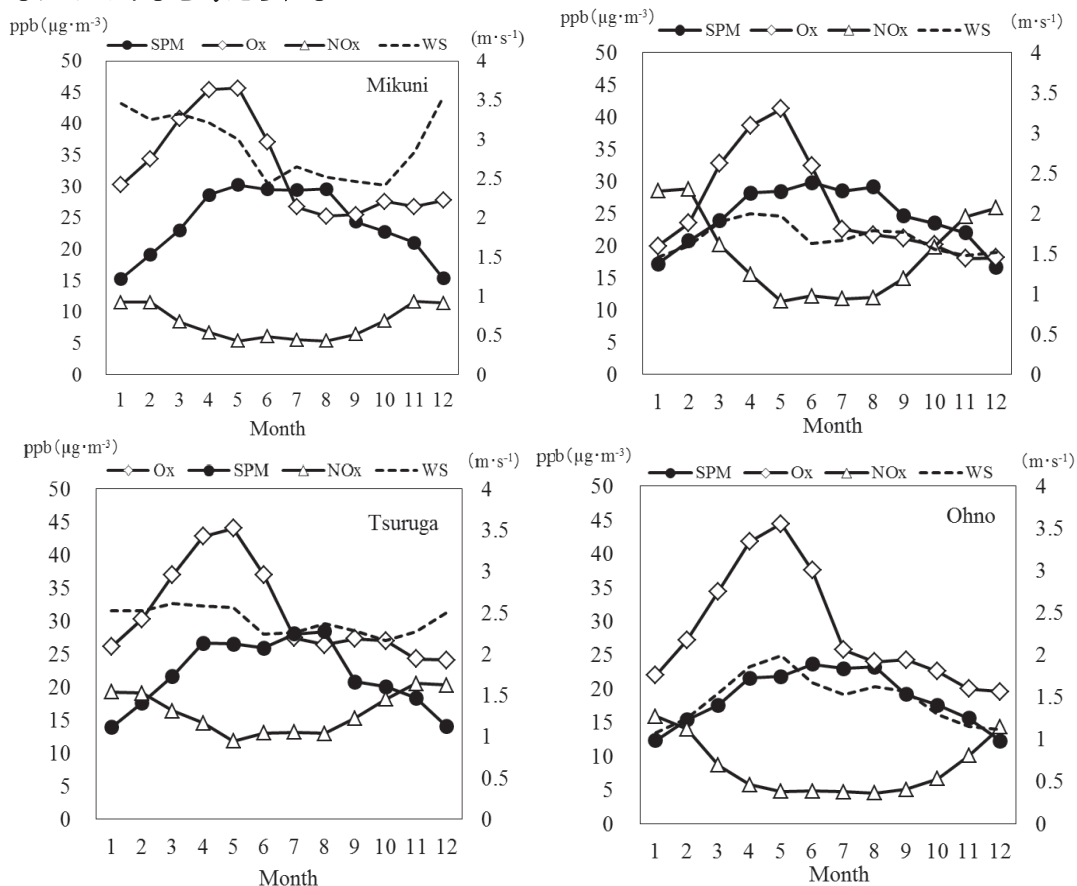


Fig.3.5 地域別 SPM, Ox, NOx 濃度および風速の季節変化
(a) 三国, (b) 福井, (c) 敦賀, (d) 大野 を示す。

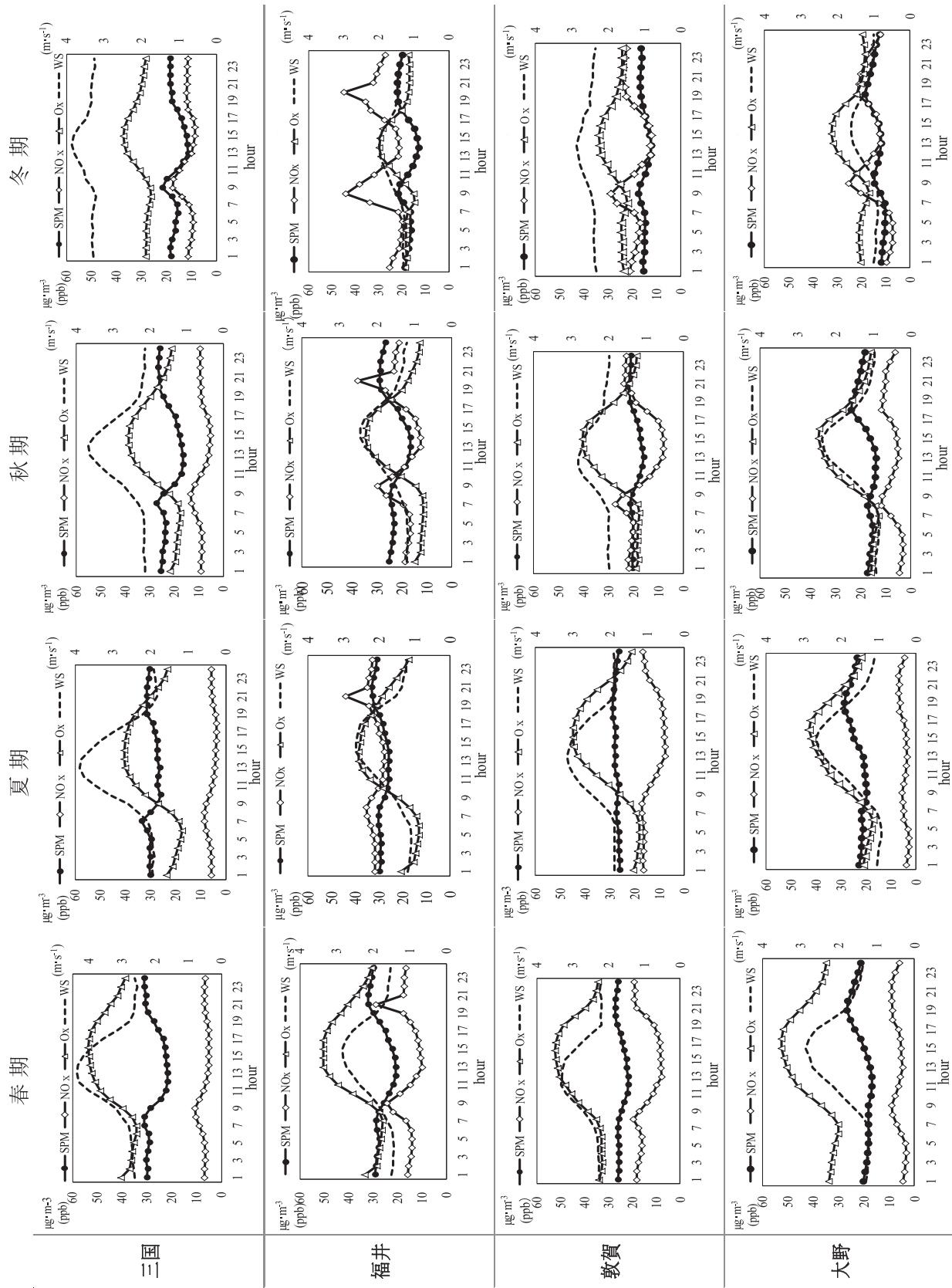


Fig.3.6 地点別SPM・Ox・NOx濃度および風速の季節変化

NO_xについては、県北中央部の福井では他の3地域（4.5 ppb～20.3 ppb）と比較して、高い濃度（11.4ppb～28.5 ppb）で推移している。自動車から排出されるNO_xの約95%程度がNOであり、残りがNO₂である⁽¹⁷⁾。福井は市街地に隣接した観測点であるため、自動車からの排ガスの影響を受けやすいことを示唆する。SPM濃度とNO_x濃度との相関係数は全地域において0.9と高い逆相関が得られた。つまり、SPM濃度は夏季に上昇し、冬期に下降するが、NO_x濃度はその逆の傾向であった。この理由について、夏季は大気の混合が活発であるためNO_x濃度は低下するが、NOの酸化反応が促進され、その結果NO₂が上昇し高濃度となる⁽¹⁵⁾。したがって、光化学反応が活発になる夏季において、NO₂が2次的なSPMの生成およびO_xの生成・消費に関与する⁽¹⁸⁾と考えられる。一方、冬期はNOの酸化反応は抑制されているが、大気が安定であるためにNO_xが高濃度となる⁽¹⁹⁾。

以上のことから、春期においては大陸からの黄砂によるSPM濃度上昇とともに、移流によるO_x濃度の上昇をもたらすことが考えられる。また、夏季のSPM濃度上昇は、NO_xの光化学反応による2次的なSPMの生成が関与していることが推測される。

(3) SPM濃度およびその他の要素の期別日変化

各地点におけるSPMとその他の大気汚染物質および風速の日変化を期別に検討した。Fig.3.6に、各地点のSPM、O_x、NO_xおよび風速（WS）の日変化傾向を示す。

SPM濃度の日変化について各地点それぞれに特徴がみられた。県北沿岸の三国では、冬期を除き15μg・m⁻³以上の濃度で推移し、年間を通して7～9時に濃度の極大値があらわれる（Fig.3.6, 三国）。県北中央部の福井においては、7～9時および19～21時に濃度の極大値を示した（Fig.3.6, 福井）。内陸部の大野では、19時に濃度が高くなった（Fig.3.6, 大野）。一方、県南沿岸部の敦賀では、濃度変化に緩やかな起伏は見られるが、濃度上昇する時間帯は他の地点と比較してはっきりと認められなかった（Fig.3.6, 敦賀）。いずれの地域においても、SPMの日変化の各地点の傾向は秋・冬期にははっきりとみられ、春・夏期においては相対的に明瞭さに欠けた。

また、各地点ともにSPMの変化傾向に対応してNO_x濃度にも同様な変化傾向がみられ、濃度上昇はSPMよりも明瞭な推移として認められた。特に市街地に隣接する福井において、NO_x濃度変化は顕著であった。これらのことから、NO_xの濃度上昇は通勤ラッシュ等の生活サイクルと一致していると考えられ、各地域で自動車が活動的になる時間帯に排気ガスに含まれる窒素酸化物（NO）が排出されたことが示唆される。

SPM濃度上昇とNO_x濃度上昇に対応する時間帯には、人間の生活サイクルの要因が含まれていることが推測される。これに対して、日中のSPM濃度の下降は、風速変化と関連していることが考えられる。つまり、いずれの地点も日出以降の風速が上昇するに伴いSPM濃度は下降した。これは、風速が大きくなることでSPM濃度の希釈効果が高くなるためであると考えられる。ただし、夏季では、三国、福井、敦賀の日中のSPM濃度の低下が抑制されているのは、海風の侵入による海塩粒子の飛来が関連していることが推測される（Fig.3.4, Fig.3.6）。

なお、O_x濃度の日変化については、どの地点においても10時～17時の時間帯に高濃度のO_xを示した。これは紫外線による光化学反応であるといえる。O_x濃度は紫外線量に比例し、気温が上昇すれば増加することが知られている。Fig.3.6に示されるように、福井県内の各地域では、日中の最高気温が出現する14時前後3時間の時間幅でO_x濃度が高くなる傾向がある。特に夏季の日中において、他期と比較してSPM濃度が高くなるのは光化学反応によって2次的に生成されているためである推測される。春期においては、O_x濃度はすべての地点で50ppmを超過し、各地点とも黄砂とともに福井県に侵入する移流の影響を受けるため、他の時期よりもO_x濃度は高くなることが考えられる。

4. まとめ

本研究では、福井県の浮遊粒子状物質（SPM）の環境濃度を、福井県一般環境大気測定局の14年

間（黄砂日データは13年間）の長期データを用いて検討し、環境濃度特性を明らかにした。

福井県内全域においてSPM濃度は、3月から5月の黄砂現象に伴って上昇する。また、内陸部を除く地域は、海陸風循環の影響を受け濃度上昇することが示唆された。SPM濃度は県北部の方が県南部および内陸部よりも高い傾向であることがわかった。季節特性では、春期において、SPMとともに移流によってO_x濃度の上昇をもたらすと考えられ、夏期のSPM濃度上昇は、県内地域における2次的なSPMの生成が関与することが推測された。また、日変化特性においては、SPM濃度の上昇とNO_x濃度の上昇の時間帯が類似しており、自動車等の人間活動に起因するものと推測した。また、夏期の日中では、SPM濃度が他の季節と比較して高くなる要因として、日中に卓越する海風の影響または光化学反応によるものであると推測された。

これらの長期解析の結果に基づき、今後はSPMの補完観測の結果を追加し、県北部沿岸域から内陸部を結ぶ領域について地域規模のSPM分布の解明を行いたいと考えている。

引用文献・資料

- 磯野謙治編，大気汚染物質の動態 大気環境の科学2（1982），山本義一監修，東京大学出版会，257pp.
- 風送大気物質問題分科会，2010，黄砂・越境大気汚染物質の地球規模循環の解明とその影響対策，日本学術会議報告書，30pp
- 一般財団法人自動車検査登録情報協会ホームページ，URL：<http://www.airia.or.jp/>（平成26年8月21日アクセス）
- 環境省，環境基準，URL：<http://www.env.go.jp/kijun/>
- 環境省，環境統計集，URL：<http://www.env.go.jp/doc/toukei/>（平成26年8月31日アクセス）
- 国立環境研究所，西日本及び日本海側を中心とした地域における光化学オキシダント濃度等の経年変動に関する研究－国立環境研究所と地方環境研究所とのC型共同研究最終報告書（平成13～15年度）－，国立環境研究所報告，第184号，239pp.
- 国立環境研究所，2007，日本における光化学オキシダント等の挙動解明に関する研究－国立環境研究所と地方環境研究所とのC型共同研究最終報告書（平成16～18年度）－，国立環境研究所研究報告，第195号，256pp.
- 国立環境研究所，2010，光化学オキシダントと粒子状物質等の汚染特性解明に関する研究－国立環境研究所と地方環境研究所とのC型共同研究最終報告書（平成19～21年度）－，国立環境研究所研究報告，第203号，219pp.
- 板野 泰之，大原 利眞，山神 真紀子，大野 隆史，長田 健太郎，武 直子，菅田 誠治，2013，2011年度の連続測定結果に基づく全国的なPM_{2.5}汚染の状況解析，大気環境学会，48(3)，154-160.
- 鶴野 伊津志，弓本 桂也，原 由香里，板橋 秀一，金谷 有剛，杉本 伸夫，大原 利眞，2013，何故2013年冬季の中国でPM_{2.5}が高濃度になったか？，大気環境学会誌，48(6)，274-280.
- 三浦麻，酒井忠彰，福島 綾子，谷口 佳文，吉川 昌範，坪内 彰，2014，日本農業気象学会2014年全国大会講演要旨集
- 気象庁，黄砂・エロゾル，URL：<http://www.data.jma.go.jp/gmd/env/aerosolhp/index.html>（平成26年8月28日アクセス）
- 気象庁，異常気象レポート（2005）URL：http://www.data.jma.go.jp/cpdinfo/climate_change/index.html.
- 浮遊粒子状物質対策検討会，浮遊粒子状物質汚染予測マニュアル，1997，環境庁大気保全局大気規制課監修，398pp.
- 浅井富雄，ローカル気象学 気象の教室2，1996，東京大学出版会，233pp.
- 環境省，大気環境・自動車対策，揮発性有機化合物（VOC）対策，URL：<https://www.env.go.jp/air/osenvoc/materials/101.pdf>.
- 岡本真一・市川陽一・長沢伸也共著，2001，環境学概論，産業図書株式会社，210pp.
- 大野隆史，2007，光化学オキシダントとNO_x・SPMとの関連，日本における光化学オキシダント等の挙動解明に関する研究（最終報告），国立環境研究所研究報告，第195号，156-162.
- 板野泰之，藁科宗博，武田海平，坂東博，前田泰昭，田中正宣，2000，大気汚染常時監視測定局のデータを用いた大阪市NO_xの挙動解析－高濃度NO₂出現パターンの季節変化－，全国公害研究会誌，25（1），31-37.